

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2002年10月28日

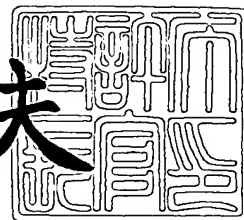
出願番号
Application Number: 特願2002-312662
[ST. 10/C]: [JP 2002-312662]

出願人
Applicant(s): 日本油脂株式会社

2003年10月 8日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2003-3083123

【書類名】 特許願

【整理番号】 P102N05161

【提出日】 平成14年10月28日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 C09D 1/00

【発明者】

【住所又は居所】 大阪府茨木市南春日丘 1 - 1 7 - 2 0 - 3 0 3

【氏名】 加田 幸司

【発明者】

【住所又は居所】 京都府京都市左京区大枝沓掛町 9 - 1 3 9 - 2 0 5

【氏名】 野村 秀幸

【発明者】

【住所又は居所】 兵庫県西宮市丸橋町 4 - 2 0 - 5 0 8

【氏名】 澤田 公平

【特許出願人】

【識別番号】 000004341

【氏名又は名称】 日本油脂株式会社

【代理人】

【識別番号】 100104673

【弁理士】

【氏名又は名称】 南條 博道

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 050740

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機酸金属塩並びに該塩を含有する金属薄膜形成用塗布液

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 飽和モノカルボン酸またはその塩と、無機マグネシウム化合物とを反応させて得られる有機酸金属塩であって、該飽和カルボン酸またはその塩が炭素数 4 ～ 1 0 の飽和モノカルボン酸またはその塩を 9 7 重量%以上含有し、該有機酸金属塩が有機酸マグネシウム塩を 9 9 重量%以上含有する、有機酸金属塩。

【請求項 2】 前記炭素数 4 ～ 1 0 の飽和モノカルボン酸が、直鎖状の炭素数 4 ～ 1 0 の飽和モノカルボン酸である、請求項 1 に記載の有機酸金属塩。

【請求項 3】 エタノール溶液に 4 0 重量%となるように溶解し、3 0℃で 1 時間放置しても白濁を生じない、請求項 1 に記載の有機酸金属塩。

【請求項 4】 有機酸金属塩の製造方法であって、
無機マグネシウム化合物 1 モルと、飽和モノカルボン酸またはその塩 2 ～ 3 モルとを反応させる工程を含み、
該飽和モノカルボン酸またはその塩が、炭素数 4 ～ 1 0 の飽和モノカルボン酸またはその塩を 9 7 重量%以上含有し、そして該有機酸金属塩が、有機酸マグネシウム塩を 9 9 重量%以上含有する、方法。

【請求項 5】 前記炭素数 4 ～ 1 0 の飽和モノカルボン酸が、直鎖状の炭素数 4 ～ 1 0 の飽和モノカルボン酸である、請求項 4 に記載の方法。

【請求項 6】 前記飽和モノカルボン酸またはその塩が、飽和モノカルボン酸である、請求項 4 または 5 に記載の方法。

【請求項 7】 前記反応が、水または水を 1 0 重量%以上含有する有機溶媒中で行われる、請求項 4 から 6 のいずれか項に記載の方法。

【請求項 8】 さらに、8 0℃以下で溶媒除去を行う工程を含む、請求項 4 から 7 のいずれかの項に記載の方法。

【請求項 9】 前記無機マグネシウム化合物が、水酸化マグネシウムである、請求項 4 から 8 のいずれかの項に記載の方法。

【請求項 1 0】 アルコール系溶媒およびアルコール系溶媒との混合溶媒か

らなる群から選択される有機溶媒 1 0 0 重量部、および請求項 1 から 3 のいずれかの項に記載の有機酸金属塩 1 ～ 1 0 0 重量部を含有する酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液。

【請求項 1 1】 前記混合溶媒が、脂肪族炭化水素系溶媒、エステル系溶媒、エーテル系溶媒、およびハロゲン系溶媒からなる群から選択される溶媒とアルコール系溶媒との混合溶媒である、請求項 1 0 に記載の酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液。

【請求項 1 2】 前記混合溶媒が、アルコール系溶媒を 5 重量%以上含有する混合溶媒である、請求項 1 0 または 1 1 に記載の酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液。

【請求項 1 3】 前記アルコール系溶媒が炭素数 1 ～ 8 の一価あるいは多価アルコールである、請求項 1 0 から 1 2 のいずれかの項に記載の酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、プラズマディスプレイパネル（PDP）用誘電体の保護膜等に用いられる酸化マグネシウム薄膜を塗布成膜法により形成するために適した有機酸マグネシウム塩に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

酸化マグネシウム薄膜は、PDP用保護膜、絶縁膜、触媒膜、表面保護膜など広い範囲に利用されている。従来、これら酸化マグネシウムをはじめとする金属酸化物の薄膜を形成する手法としては、スパッタ法、真空蒸着法などの物理的成膜法が用いられている。これらの手法は、均一で緻密な結晶性の高い薄膜が得られる反面、真空系で成膜を行うため、大型かつ複雑で、高価な装置が必要である。また、バッチ式での生産であるため生産効率が悪く、製造コストが高くなるという問題がある。

【0 0 0 3】

一方、上記物理的成膜法に対して、高価で複雑な装置の必要がなく、しかも簡単な工程で金属酸化物薄膜を形成できる方法として、塗布成膜法がある。

【 0 0 0 4 】

塗布成膜法には、種々のアルカリ土類金属の化合物が用いられている。例えば、MgO粒子と焼成によりMgOを形成するMgO前駆体（特許文献1および特許文献2）、アルカリ土類金属（例えば、マグネシウム）のアルコキシド（特許文献3および特許文献4）、あるいは、有機酸マグネシウム塩（特許文献5および特許文献6）などを含む、金属酸化物（酸化マグネシウム）薄膜形成用組成物が知られている。

【 0 0 0 5 】

しかしながら、上記金属酸化物薄膜形成用組成物（塗布液）は、一般に、経時安定性が悪く、均一な薄膜が得られない、あるいは膜厚の薄いものしか得られないなどの問題がある。

【 0 0 0 6 】

ところで、有機酸マグネシウム塩を用いる塗布成膜法は、他のマグネシウム化合物を用いる塗布成膜法よりも比較的簡便であるため、その改良が検討されている。例えば、塗布液として用いる溶媒を種々検討することにより、経時安定性の改良を行い、実用に値する膜厚を有する酸化マグネシウム薄膜が得られている（特許文献5および特許文献6）。

【 0 0 0 7 】

しかしながら、特許文献5および特許文献6では、溶媒として、キシレンなどの芳香族系炭化水素、およびジエタノールアミンなどのアミン系化合物を使用している。そのため、塗布後、焼成する際に、アミン系化合物の分解により発生するNO_xが大気中に放出され、環境に悪影響を及ぼす。また、芳香族系炭化水素は、それ自体分解しがたい化合物であるので、焼成の際に完全に分解せず、酸化マグネシウム薄膜中に炭化物あるいは炭素が残る可能性がある。その結果、電気特性、膜強度などの膜特性に悪影響を及ぼすといった問題がある。

【 0 0 0 8 】

従って、酸化マグネシウム薄膜形成に際して、乾燥・焼成時に蒸発・分解しや

すく、かつ、環境に悪影響を及ぼさない溶媒を用いること、および、その溶媒に溶解し、溶解したときに、白濁、沈澱等が生じない、経時安定性の高い塗布液を作成できる有機酸マグネシウム塩が望まれている。

【0009】**【特許文献1】**

特開平9-12940号公報

【特許文献2】

特開平9-208851号公報

【特許文献3】

特開平6-162920号公報

【特許文献4】

特開平8-329844号公報

【特許文献5】

特開平9-95627号公報

【特許文献6】

特開平9-129141号公報

【0010】**【発明が解決しようとする課題】**

本発明の目的は、焼成時に環境に悪影響を及ぼすことのない溶媒を用い、この溶媒に高濃度に溶解して、経時安定性に優れた塗布液を形成でき、かつこの塗布液を塗布することにより、膜強度、透明性、および実用に耐えうる膜厚を有する酸化マグネシウム薄膜を得ることができる、実質的に有機酸マグネシウム塩からなる有機酸金属塩を提供することにある。

【0011】**【課題を解決するための手段】**

本発明者らは、上記目的を達成するため鋭意検討を重ねた結果、無機マグネシウム化合物と、特定の成分を有する飽和モノカルボン酸とを原料として有機酸マグネシウム塩を合成することにより、本発明を完成させた。

【0012】

本発明は、飽和モノカルボン酸またはその塩と、無機マグネシウム化合物とを反応させて得られる有機酸金属塩であって、該飽和カルボン酸またはその塩が炭素数4～10の飽和モノカルボン酸またはその塩を97重量%以上含有し、該有機酸金属塩が有機酸マグネシウム塩を99重量%以上含有する有機酸金属塩を提供する。

【0013】

好ましい実施態様においては、前記炭素数4～10の飽和モノカルボン酸が、直鎖状の炭素数4～10の飽和モノカルボン酸である。

【0014】

また、別の好ましい実施態様においては、エタノール溶液に40重量%となるように溶解し、30℃で1時間放置しても白濁を生じない。

【0015】

また、本発明は、有機酸金属塩の製造方法であって、無機マグネシウム化合物1モルと、飽和モノカルボン酸またはその塩2～3モルとを反応させる工程を含み、該飽和モノカルボン酸またはその塩が、炭素数4～10の飽和モノカルボン酸またはその塩を97重量%以上含有し、そして該有機酸金属塩が、有機酸マグネシウム塩を99重量%以上含有する、方法を提供する。

【0016】

好ましい実施態様においては、前記炭素数4～10の飽和モノカルボン酸が、直鎖状の炭素数4～10の飽和モノカルボン酸である。

【0017】

また、別の好ましい実施態様においては、前記飽和モノカルボン酸またはその塩が、飽和モノカルボン酸である。

【0018】

好ましい実施態様においては、前記反応が、水または水を10重量%以上含有する有機溶媒中で行われる。

【0019】

また、好ましい実施態様においては、さらに、80℃以下で溶媒除去を行う工程を含む。

【0020】

別の好ましい実施態様においては、前記無機マグネシウム化合物が、水酸化マグネシウムである。

【0021】

本発明は、さらに、アルコール系溶媒およびアルコール系溶媒との混合溶媒からなる群から選択される有機溶媒 100 重量部、および前記有機酸金属塩 1～100 重量部を含有する酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液を提供する。

【0022】

好ましい実施態様においては、前記混合溶媒が、脂肪族炭化水素系溶媒、エステル系溶媒、エーテル系溶媒、およびハロゲン系溶媒からなる群から選択される溶媒とアルコール系溶媒との混合溶媒である。

【0023】

好ましい実施態様においては、前記有機溶媒がアルコール系溶媒を 5 重量%以上含有する混合溶媒である。

【0024】

また、好ましい実施態様においては、前記アルコール系溶媒が炭素数 1～8 の一価あるいは多価アルコールである。

【0025】**【発明の実施の形態】**

以下に本発明について詳細に説明する。

【0026】

本発明の有機酸金属塩は、飽和モノカルボン酸またはその塩（a 成分）と無機マグネシウム化合物（b 成分）とから合成される有機酸金属塩であって、有機酸金属塩中の 99 重量%以上が有機酸マグネシウム塩である、実質的に有機酸マグネシウム塩からなる化合物である。

【0027】

本発明の有機酸金属塩（実質的には有機酸マグネシウム塩）の製造に用いられる a 成分は、炭素数 4～10 の飽和モノカルボン酸またはその塩を 97 重量%以上含有していることが必要である。好ましくは 98 重量%以上、より好ましくは

99%重量以上含有している。

【0028】

炭素数3以下の飽和カルボン酸を用いて得られる有機酸マグネシウム塩は、酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液としたときに、結晶化し、白色の微小な粒子を形成しやすい傾向にある。そのため、塗布液が均一に塗布されにくい。あるいは、塗布時に有機酸マグネシウム塩は溶解しているが、塗膜後、乾燥により塗膜が白濁し、焼成して得られる酸化マグネシウム薄膜も白濁しやすくなる。炭素数11以上のカルボン酸を用いて得られる有機酸マグネシウム塩は、溶媒に対する溶解性が乏しく、塗布液を作ることが困難となる。

【0029】

炭素数4～10の飽和モノカルボン酸またはその塩は、化学合成により製造されている。しかし、化学合成で得られる飽和モノカルボン酸またはその塩には、デカン、ドデカン、トリデカンなどのパラフィン系化合物、2-ウンデカノンなどのケトン系化合物、長鎖アルコール類、長鎖アルデヒド類など、精製段階で蒸留によって除去しきれない不純物が含有されている。さらに、合成時の原料に由来する炭素数3以下、あるいは11以上のカルボン酸が含まれる場合がある。また、天然から得られる炭素数4～10の飽和モノカルボン酸においても、上記不純物に加えて、所望の鎖長以外のカルボン酸成分を含有することがある。

【0030】

これらの不純物は、有機酸マグネシウム塩を合成する際、未反応の無機マグネシウム化合物および反応によって生じる有機酸マグネシウム塩を抱き込み、粘着成分を形成する。この粘着成分は、有機溶媒にも溶解しにくく、精製によっても除去されにくく、生成物中に残存する。このような不純物が合計で3重量%を超える場合、塗布液を調製する際に、沈澱、白濁などを生じるため、所定濃度の有機酸マグネシウム塩を調製できないという不具合が生じる。また、酸化マグネシウム薄膜が白濁する原因にもなり得る。

【0031】

本発明には、炭素数4～10の飽和モノカルボン酸が好ましく用いられる。炭素数4～10の飽和モノカルボン酸としては、例えば、酪酸、イソ酪酸、吉草酸

、イソ吉草酸、カプロン酸、2-エチルブタン酸、ヘプタン酸、オクタン酸、2-エチルヘキサン酸、ノナン酸、デカン酸などが挙げられる。好ましくは、炭素数4～10の直鎖飽和モノカルボン酸である。分岐飽和モノカルボン酸を用いて合成された有機酸マグネシウム塩の熱分解開始温度および熱分解終了温度は、直鎖飽和モノカルボン酸を用いて合成された有機酸マグネシウム塩の熱分解開始温度および熱分解終了温度よりも、それぞれ、高くなる。従って、焼成に際して、より高温が要求され、経済的ではない。また、分岐飽和モノカルボン酸を用いて合成された有機酸マグネシウム塩は、構造自体が分解しにくい構造となるため、焼成後の酸化マグネシウム(MgO)膜中に分解残渣が存在する可能性がある。本発明に用いられる飽和モノカルボン酸は、単独の化合物であってもよいし、2種類以上の組み合わせであっても良い。

【0032】

好ましくは、炭素数4～6の飽和モノカルボン酸、より好ましくは炭素数4～6の直鎖飽和モノカルボン酸が用いられる。飽和モノカルボン酸の炭素数が少ないほど、得られる有機酸金属塩の溶媒への溶解性、ならびに焼成後の酸化マグネシウム薄膜の強度が高くなる。

【0033】

a成分として使用される飽和モノカルボン酸塩は、前述の飽和モノカルボン酸にアルカリ水溶液を反応させて得られる化合物である。ナトリウム、カリウムなどのアルカリ金属塩、アンモニウム塩、ジエチルアミン、トリエチルアミン、エタノールアミンなどのアミン塩などが挙げられる。特に好ましくはアンモニウム塩、およびアミン塩である。アルカリ金属塩を用いた場合、最終的に得られる、実質的に有機酸マグネシウムからなる有機酸金属塩中に飽和脂肪酸アルカリ金属塩が残留し、焼成後の酸化マグネシウム薄膜の電気特性および膜強度などに悪影響を及ぼす可能性がある。

【0034】

本発明に用いられる飽和モノカルボン酸またはその塩の純度は、ガスクロマトグラフ、ガスクロマトグラフ質量分析装置などを用いて測定することができる。

【0035】

a 成分として飽和モノカルボン酸を用いる場合、b 成分の無機マグネシウム化合物としては、水酸化マグネシウム、酸化マグネシウム、炭酸マグネシウムなどが挙げられる。反応時に溶液が取扱いやすく、均一に反応が進行しやすい点を考慮すると、水酸化マグネシウムが好ましく用いられる。他方、a 成分として飽和モノカルボン酸塩を用いる場合、b 成分としては塩化マグネシウム、硫酸マグネシウムなどの水溶性無機マグネシウム化合物が用いられる。副生する塩の除去性を考慮すると、水に溶解しやすい硫酸ナトリウムを形成し得る硫酸マグネシウムが好ましく用いられる。

【0036】

通常、原料として用いられる無機マグネシウム化合物には、不純物として、カルシウムなどの金属が含まれている。この不純物を含有する原料を用いて有機酸金属塩を合成した場合、これらの金属も飽和モノカルボン酸と反応して有機酸金属塩を生成する。これらの生成した有機酸金属塩を有機酸マグネシウム塩から分離・除去するのは困難である。このため、無機マグネシウム化合物（b 成分）に含まれる全金属に対するマグネシウムの割合は 99 重量%以上であることが好ましい。マグネシウムの含有量が、全金属量に対して 99 重量%未満である無機マグネシウム化合物を出発原料として用いると、得られる有機酸金属塩は、アルコール類をはじめとする溶媒に溶解したときに、白濁を生じる。このような有機酸金属塩を含有する塗布液は、経時安定性が悪く、沈殿物を生じる。さらに、この有機酸金属塩を含有する塗布液を用いて、酸化マグネシウム薄膜を成膜すると、得られる酸化マグネシウム薄膜は白濁やひび割れを生じる。

【0037】

本発明の有機酸金属塩中のマグネシウム、およびその他の金属の含有量は、原子吸光分析法、蛍光X線分析法、誘導結合プラズマ発光分析法などを用いて測定することができる。

【0038】

本発明の有機酸金属塩は、上記炭素数 4～10 の飽和モノカルボン酸を 97% 重量以上含む a 成分と無機マグネシウム化合物（b 成分）とを、好ましくは、後述の方法で反応させることにより得られる。

【0039】

本発明の有機酸金属塩には、有機酸マグネシウム塩が99重量%以上、より好ましくは99.5重量%以上含まれている。上記の通り、出発材料である飽和モノカルボン酸（a成分）と無機マグネシウム化合物（b成分）との反応では、これらの原料に由来する不純物が完全に除去されないため、マグネシウム以外の金属（例えば、カルシウム）に由来する有機酸金属塩などが存在する。この有機酸金属塩中の有機酸マグネシウム塩の含有量が99重量%未満であると、有機酸金属塩の溶媒への溶解性が悪く、白濁を生じる。さらに、この有機酸金属塩を含有する塗膜用塗布液を用いて、酸化マグネシウム薄膜を成膜すると、得られる酸化マグネシウム薄膜は白濁やひび割れを生じる。

【0040】

また、本発明の有機酸金属塩は、マグネシウムを全金属中の99重量%以上含むことが好ましい。より好ましくは99.5重量%以上である。マグネシウム以外の不純物金属が1重量%を超えて含まれると、上記のように、有機酸金属塩の溶解時に白濁が生じる。さらに、このように不純物金属が多い有機酸金属塩を含有する塗布液は、経時安定性が悪く、沈殿物を生じ、そして酸化マグネシウム薄膜を成膜すると、得られる酸化マグネシウム薄膜は白濁やひび割れを生じる。

【0041】

本発明の有機酸金属塩の製造方法は、（1）炭素数4～10の飽和モノカルボン酸を97重量%以上含有する飽和カルボン酸またはその塩（a成分）と無機マグネシウム化合物（b成分）を用いて、塩を形成させる工程と、（2）溶媒除去を行う工程とを含む。

【0042】

（1）の塩形成反応においては、無機マグネシウム化合物1モルと、炭素数4～10の飽和モノカルボン酸またはその塩2～3モル、好ましくは2～2.5モルとを反応させる。飽和モノカルボン酸またはその塩は、モル等量（すなわち、マグネシウム1モルに対して飽和モノカルボン酸またはその塩2モル）よりもわずかに過剰に（例えば、1～数%程度過剰に；具体的には、2.02～2.1モル程度）使用することが、残存する飽和モノカルボン酸量を極力少なくできるの

で、最も好ましい。無機マグネシウム化合物 1 モルに対して飽和モノカルボン酸またはその塩を 2 モル未満で反応させた場合、反応が完全に進行せず、塗布液を調製したときに白濁を引き起こす原因となる虞がある。また、得られた塗布液を用いて酸化マグネシウム薄膜を形成し、焼成した場合、白濁やひび割れが発生する。無機マグネシウム化合物 1 モルに対して、飽和モノカルボン酸またはその塩を 3 モルを超えて反応させた場合には、最終的に脱溶媒して精製した後も、未反応のカルボン酸が残存し、相対的に金属含有量の低い有機酸金属塩となるため、焼成後に得られる酸化マグネシウム薄膜の膜厚は非常に薄く、実用に耐えうるものではない。

【0043】

本発明の有機酸金属塩の製造方法には、直接法と複分解法がある。直接法は、酸化マグネシウム、水酸化マグネシウムなどの金属化合物とカルボン酸とを直接反応させる方法である。複分解法は、塩化マグネシウムなどのマグネシウム塩の水溶液とカルボン酸ナトリウム塩などのカルボン酸塩溶液とを混合し、塩交換を行う方法である。本発明においては、いずれの方法を用いてもよいが、塩化ナトリウムなど、マグネシウム以外の無機金属塩のような不純物を副生しないという点から、本発明においては、直接法を用いることがより好ましい。

【0044】

直接法を用いる場合、水酸化マグネシウムを用いることが好ましい。例えば、酸化マグネシウムを原料とする場合、反応が完全に進行しない可能性がある。このような場合、有機酸金属塩は、溶媒への溶解性が著しく低下する。

【0045】

(1) の塩形成反応において、溶媒として、水、または水を 10 重量%以上含有する有機溶媒が好ましく用いられる。水には、反応を促進する触媒としての効果と、均一に反応を進行させるための溶媒としての効果がある。反応に用いる有機溶媒中に水を 10 重量%未満しか含有しない場合、触媒としての機能が十分発揮されず、反応の進行が著しく遅くなり、最終的に得られる有機酸金属塩は、有機溶媒への溶解性が劣る。

【0046】

(1) の塩形成反応に用いられる有機溶媒としては、炭化水素系溶媒、アルコール系溶媒、エステル系溶媒、エーテル系溶媒が好ましく用いられる。炭化水素系溶媒としては、*n*-ヘキサン、*n*-オクタン、シクロヘキサン、トルエン、キシレンなどが挙げられる。アルコール系溶媒としては、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、エチレングリコール、プロピレングリコールなどが挙げられる。エステル系溶媒としては、酢酸エチル、酢酸ブチル、エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートなどが挙げられる。エーテル系溶媒としては、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテルなどが挙げられる。これらの溶媒は単独で用いてもよいし、2 種以上を混合して用いてもよい。

【0047】

(1) の塩形成反応における反応温度は、40℃以上80℃以下であることが好ましい。さらに好ましくは40℃以上70℃以下である。40℃未満では、有機酸金属塩の合成反応は、ほとんど進行しない。80℃を超える温度で合成された有機酸金属塩を溶解して得られる酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液は、濁りを生じやすい。さらに、この塗布液を基板に塗布し、乾燥、焼成した場合、形成される酸化マグネシウム薄膜に濁りを生じる場合がある。

【0048】

(2) の溶媒除去工程においては、80℃以下の温度で溶媒除去を行うことが好ましい。より好ましくは70℃以下、特に好ましくは60℃以下で、溶媒除去を行う。80℃を超える温度で溶媒除去を行った場合、得られる有機酸金属塩は、有機溶媒への溶解速度が著しく低下する。また、有機酸金属塩を溶解した酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液の経時安定性も悪くなる。溶媒除去方法としては、当業者が通常用いる方法が用いられる。例えば、減圧乾燥、凍結乾燥、噴霧乾燥、気流乾燥、反応溶液から結晶を析出させ、析出した結晶を取り出して減圧乾燥する方法などが好適に用いられる。溶媒除去は、できるだけ短時間で行うことが好ましい。

【0049】

このようにして製造された有機酸金属塩は、99重量%以上の有機酸マグネシウム塩を含有し、酸化マグネシウム薄膜形成のために好適に用いることができる。

【0050】

また、得られた有機酸金属塩は、アルコール系溶媒に高濃度に溶解し、エタノールに40重量%となるように溶解し、30℃で1時間放置しても白濁を生じない。

【0051】

本発明の酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液は、本発明の有機酸金属塩を適切な有機溶媒に溶解することにより得られる。塗布液は、有機溶媒100重量部あたり、本発明の有機酸金属塩を、1～100重量部の割合で含有する。有機酸金属塩の含有量が、1重量部未満の場合、成膜した酸化マグネシウム薄膜の膜厚が薄すぎて、実用に耐え得ない。また、膜厚を厚くするには、多数回塗布焼成を繰り返さなければならず、生産性が悪い。有機酸金属塩の含有量が100重量部を超える場合、有機酸マグネシウム塩が析出し、均一な塗膜ができず、均一な酸化マグネシウム薄膜を得ることができない。

【0052】

塗布液を形成するための有機溶媒は、アルコール系溶媒およびアルコール系溶媒との混合溶媒からなる群から選択される。アルコール系溶媒と混合される溶媒としては、脂肪族炭化水素系溶媒、エステル系溶媒、エーテル系溶媒、およびハロゲン系溶媒からなる群から選択される溶媒が好ましい。これらの混合溶媒には、好ましくは、アルコール系溶媒が5重量%以上、より好ましくは30重量%以上、さらに好ましくは50重量%以上含有される。アルコール系溶媒を5重量%以上含有する混合溶媒は、有機酸金属塩を均一に溶解し得る。

【0053】

アルコール系溶媒としては、炭素数1～8の一価あるいは多価アルコールを用いることが好ましい。炭素数が9以上のアルコール系溶媒を用いた場合、本発明の有機酸金属塩を均一に溶解するのが困難になる虞がある。例えば、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、ヘプ

タノール、オクタノール、テルピネオール、エチレングリコール、プロピレングリコールなどが挙げられる。

【0054】

脂肪族炭化水素系溶媒としては、*n*-ヘキサン、オクタン、シクロヘキサンなどが挙げられる。

【0055】

ハロゲン系溶媒としては、ジクロロメタン、クロロホルムなどが挙げられる。

【0056】

エーテル系溶媒としては、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、テトラヒドロフランなどが挙げられる。

【0057】

エステル系溶媒としては、エチレングリコールモノエチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートなどが挙げられる。

【0058】

上記脂肪族炭化水素系溶媒、ハロゲン系溶媒、エステル系溶媒、またはエーテル系溶媒は、単独であるいは2種類以上を組合せて、アルコール系溶媒と混合され得る。

【0059】

上記溶媒のうち、アルコール系溶媒としては、エタノール、プロパノール、および*n*-ブタノールが好ましく用いられる。アルコール系溶媒との混合溶媒として用いられる溶媒としては、エチレングリコールモノエチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル、プロピレングリコールモノエチルエーテル、プロピレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテルアセテート、プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテートなどが挙げられる。

【0060】

また、溶媒としては、沸点が50℃以上である溶媒が好ましく用いられる。沸点が50℃未満である溶媒を用いて塗布液を作成すると、この塗布液を基板に塗

布する際に溶媒が揮発しやすく、均一な膜を作成することが困難となる。本発明で得られる有機酸マグネシウム塩は、各種溶剤に対する溶解性があるが、一部溶剤に対しては高い溶解性を持っている。例えば、カプロン酸と水酸化マグネシウムから合成される本発明の有機酸マグネシウム塩は、エタノール100gに対して、50gを溶解させることが可能である。

本発明で得られる有機酸マグネシウムを溶解させた溶液は着色のないのが特徴である。例えば、カプロン酸と水酸化マグネシウムから合成される本発明に含まれる有機酸マグネシウム塩は、その重量比50%エタノール溶液では、450nmよりも波長の長い領域でほとんど吸収が認められない。

【0061】

本発明の塗布液には、本発明の効果を損なわない範囲で他の金属有機酸塩が含有されていてもよい。他の金属有機酸塩としての金属成分としては、例えば、2族のカルシウム、ストロンチウム、バリウム、3族のイットリウム、ランタン系列のランタン、セリウム、プラセオジウム、ネオジウム、サマリウム、ユーロビウム、ガドリニウム、テルビウム、ジスプロシウム、ホルミウム、4族のチタン、ジルコニウム、5族のバナジウム、ニオブ、6族のクロム、7族のマンガン、8族の鉄、9族のコバルト、10族のニッケル、11族の銅、銀、金、12族の亜鉛、13族のホウ素、アルミニウム、ガリウム、インジウム、14族のケイ素、ゲルマニウム、スズ、15族のアンチモン、ビスマスなどが挙げられる。酸成分としては、酢酸、オクチル酸、カプロン酸、ナフテン酸などが挙げられる。配合され得る金属有機酸塩としては、例えば、酢酸コバルト、酢酸亜鉛、四酢酸ケイ素、オクチル酸スズ、カプロン酸スズ、ナフテン酸スズ、カプロン酸アルミニウムなどが挙げられる。

【0062】

また、本発明の塗布液には、本発明の効果を損なわない範囲、すなわち塗布液の溶媒に対して均一に溶解する範囲で、増粘剤、消泡剤、レベリング剤などの添加剤が含有されてもよい。増粘剤としては、エチルセルロース、ニトロセルロースなどのセルロース系の増粘剤、あるいは、トリデカン酸マグネシウム、テトラデカン酸マグネシウム、ヘプタデカン酸マグネシウム、オクタデカン酸マグネシ

ウムなどの炭素数 13 以上の有機酸マグネシウム塩などが挙げられる。消泡剤、レベリング剤としてはアニオン型活性剤、ノニオン型活性剤、カチオン型活性剤、ポリマー系レベリング剤などが挙げられる。

【0063】

本発明の有機酸金属塩を基板表面に塗布する方法には、特に制限はない。例えば、刷毛塗り法、浸漬法、スピナー法、スプレー法、スクリーン印刷法、ロールコーター法、インクジェット方式によるパターン形成などが用いられる。これら塗布方法によって得られた膜を乾燥後、焼成することにより、酸化マグネシウム膜を作成することができる。また、本発明の有機酸金属塩を塗布した膜を金属酸化薄膜とするには、当業者が通常用いる方法が使用される。例えば、200℃以上の温度で焼成する方法、紫外光を照射して金属酸化薄膜を基板上に形成させる方法などを用いることができる。また、これらの方法を併用することもできる。

【0064】

本発明の酸化マグネシウム薄膜を形成するための基板としては、通常当業者が用いる基板、例えば、ガラス基板、ポリカーボネートあるいはエポキシ樹脂などの樹脂基板、樹脂フィルムなどが挙げられる。特に、高温、例えば200℃以上の温度で焼成を行って金属酸化薄膜を作成する場合には、ガラスが好適である。紫外光照射によって金属酸化薄膜を形成する場合には、樹脂基板あるいは樹脂フィルムが好適である。

【0065】

焼成は、200℃以上が好ましく、350℃以上がさらに好ましく、450℃以上がさらに好ましい。

【0066】

【実施例】

以下に、本発明の有機酸金属塩の製造方法並びにこの有機酸金属塩を用いる酸化マグネシウム薄膜の形成方法について、実施例を挙げて具体的に説明する。なお、実施例において「部」は重量部を示す。

【0067】

(使用原料)

本発明に用いた原料およびその組成を表 1 に示す。なお、飽和モノカルボン酸中の不純物含有量は、ガスクロマトグラフィーにより定量した。

【 0 0 6 8 】

【表 1】

カルボン酸名	カルボン酸	パラフィン系化合物	ケトン系化合物	長鎖アルコール化合物	長鎖アルデヒド化合物
酪酸A	99.5	0.4	—	0.1	—
酪酸B	96.0	2.9	0.9	—	0.2
吉草酸	99.5	0.3	0.1	—	0.1
カプロン酸A	99.1	0.6	0.3	—	—
カプロン酸B	96.0	2.5	0.9	0.6	—
カプリル酸	99.2	0.4	0.4	—	—
カプリン酸	99.4	0.5	—	0.1	—
ラウリン酸	99.9	—	0.1	—	—

単位:重量%

【 0 0 6 9 】

なお、表 1 において、酪酸 B、カプロン酸 B は、その純度がそれぞれ 9 7 % 未満であり、本発明に用いる a 成分の要件をみたしていない。その他の飽和モノカルボン酸は、本発明に用いる a 成分の要件をみたしている。

【 0 0 7 0 】

(有機酸金属塩の評価方法)

(1) 有機酸金属塩中の金属 (M g および C a) の含有量

蛍光 X 線分析により定量した。

【 0 0 7 1 】

(2) 有機酸マグネシウム塩の含有量

1 1 0 °C で 1 時間乾燥した試料約 1 0 g を精秤し (A (g))、イオン交換水約 2 0 0 g を加え、液温を 7 0 °C に保ちながら約 1 時間攪拌して溶解し、0. 5 μ m のポリテトラフルオロエチレン (P T F E) 製メンブランフィルターを用いて濾過する。この濾液を減圧脱水後、1 1 0 °C で 1 時間乾燥して得られた白色固体にアセトン約 1 0 0 g を加えて、2 5 °C で 1 0 分間攪拌後、ブフナーロートを

用いて減圧濾過する。ろ紙上に残った白色固体を 8 0 ℃で 3 時間減圧乾燥し、精秤する (B (g))。この白色固体を灰化後、塩酸に溶解して原子吸光を測定して、金属中のマグネシウムの割合を測定する (C)。有機酸マグネシウム塩の含有量 (重量%) は、以下の式から算出する。

$$\text{有機酸マグネシウム塩の含有量 (重量\%)} = \{ (B/A) \times C \} \times 100$$

【 0 0 7 2 】

(3) 有機酸金属塩のエタノールへの溶解性

有機酸金属塩を、4 0 重量%となるようにエタノールに溶解し、3 0 ℃で 1 時間放置した後、溶液の状態を目視により判断した。表 2 および表 3 における評価は、以下の意味を表す。

○・・・溶解し、白濁が全く観察されなかった。

×・・・濁りまたは沈殿物が観察された。

【 0 0 7 3 】

(4) 有機酸金属塩を有機溶媒への溶解性

所定量の有機酸金属塩を、表 4 に記載の組成比 (重量比) を有する混合溶媒に溶解し、3 0 ℃で 1 時間放置した後、溶液の状態を目視により判断した。表 4 における評価は、以下の意味を表す。

○・・・白濁は観察されなかった。

△・・・薄濁りが観察された。

×・・・沈殿物が観察された。

【 0 0 7 4 】

(5) 有機酸金属塩を含有する塗布液の経時安定性

所定量の有機酸金属塩を、表 4 に記載の組成比を有する混合溶媒に溶解し、3 0 ℃で 1 時間放置した後、溶液を 0. 5 μ m P T F E 製メンブランフィルターを用いて濾過した。3 0 ℃で 2 週間放置した溶液中の白色沈殿物の有無を目視により判断した。表 4 における評価は、以下の意味を表す。

○・・・白濁は観察されなかった。

△・・・薄濁りが観察された。

×・・・沈殿物が観察された。

【0075】

(6) 焼成により得られた酸化マグネシウム薄膜 (MgO膜) の膜厚

株式会社ULVAC製 触針式表面形状測定器DEKTAC 3STを用いて膜厚を測定した。

【0076】

(7) 焼成により得られた酸化マグネシウム薄膜の白濁・ひび割れの有無の観察

株式会社ULVAC製 触針式表面形状測定器DEKTAC 3STを用いて表面観察した。

【0077】

(実施例1：有機酸金属塩の製造)

攪拌装置、冷却管、温度計、窒素導入管を取り付けた4つ口フラスコに、飽和モノカルボン酸 (a成分) であるn-酪酸77.7g (0.88mol) と、無機マグネシウム化合物 (b成分) である水酸化マグネシウム25.0g (0.43mol)、および溶媒である水300gを加え、窒素気流下、攪拌しながら、内温を60℃まで昇温した。達温後、さらに3時間攪拌して、無色透明水溶液を得た。その後、内温が50℃になるまで冷却してから、溶媒を減圧留去し、白色固体86.2gを得た。

【0078】

110℃で1時間乾燥した試料9.9874g (A) をフラスコに採取し、イオン交換水190gを加え、液温を70℃に保ちながら1時間攪拌して溶解した。溶解液を0.5μmのPTFE製メンブランフィルターを用いて濾過した。この濾液をエバポレーターで減圧脱水後、110℃のオーブン中で1時間乾燥し、白色固体を得た。この白色固体にアセトン100gを加え、25℃で10分間攪拌後、ブフナーロートを用いて減圧濾過を行った。ろ紙上に残った固体を80℃で3時間減圧乾燥し、重量を測定したところ9.9773g (B) であった。この白色固体を800℃で1時間加熱灰化し、1N塩酸3mlに溶解し、原子吸光を測定したところ、全金属に対するマグネシウムの割合は0.996 (マグネシウム含量：99.6重量%) (C) であった。前記式から求めた有機酸マグネシウム塩の含有量 (酪酸マグネシウムの純度) は、99.5重量%であった。

【0079】

(実施例2：有機金属塩の製造)

攪拌装置、冷却管、温度計、窒素導入管を取り付けた4つ口フラスコに、飽和モノカルボン酸（a成分）であるn-吉草酸89.3g（0.87mol）と、無機マグネシウム化合物（b成分）である水酸化マグネシウム25.0g（0.43mol）、および溶媒である水300gを加え、窒素気流下、攪拌しながら、内温を60℃まで昇温した。達温後、さらに3時間攪拌して、無色透明水溶液を得た。その後、反応液を冷却して結晶を析出させ、さらに、析出した結晶を濾別してステンレス製のバットに移し、50℃で減圧乾燥し、白色固体98.1gを得た。

【0080】

白色固体10.0878g（A）を採取し、実施例1と同様の操作を行ったところ、濾紙上に残った固体の乾燥重量（B）は10.0777g、マグネシウムの含有割合（C）は0.996であった。上記式から求めた有機酸マグネシウム塩の含有量（吉草酸マグネシウムの純度）は、99.5重量%であった。

【0081】

(実施例3：有機酸金属塩の製造)

攪拌装置、冷却管、温度計、窒素導入管を取り付けた4つ口フラスコに、飽和モノカルボン酸（a成分）であるn-カプロン酸101.6g（0.87mol）と、無機マグネシウム化合物（b成分）である水酸化マグネシウム25.0g（0.43mol）、および溶媒である水300gを加え、窒素気流下、攪拌しながら、内温を55℃まで昇温した。達温後、さらに3時間攪拌して、無色透明水溶液を得た。反応後、放冷した後、凍結乾燥機で20時間脱溶媒を行い、生成物101.3gを得た。

【0082】

白色固体9.9564g（A）を採取し、実施例1と同様の操作を行ったところ、濾紙上に残った固体の乾燥重量（B）は9.9464g、マグネシウムの含有割合（C）は0.996であった。上記式から求めた有機酸マグネシウム塩の含有量（カプロン酸マグネシウムの純度）は、99.5重量%であった。

【 0 0 8 3 】

(実施例 4 および 5)

表 2 記載の反応条件で、実施例 1 と同様の製造方法で有機酸マグネシウム塩の製造を行い、有機酸マグネシウム塩の含有量を求めた。

【 0 0 8 4 】

(実施例 6)

表 2 記載の反応条件で、実施例 3 と同様の製造方法で有機酸マグネシウム塩の製造を行い、有機酸マグネシウム塩の含有量を求めた。

【 0 0 8 5 】

(実施例 7)

表 2 記載の反応条件で、実施例 1 と同様の製造方法で有機酸マグネシウム塩の製造を行った。

【 0 0 8 6 】

(比較例 1 ～ 1 0)

表 3 に記載の反応条件で、実施例 1 と同様の製造方法で有機酸マグネシウム塩の製造を行い、有機酸マグネシウム塩の含有量を求めた。

【 0 0 8 7 】

表 2 に、実施例 1 ～ 7、および表 3 に比較例 1 ～ 1 0 で、それぞれ使用した原料の種類、性状、使用量、使用溶媒、反応条件、および生成物（有機酸金属塩）の純度、並びに生成物である有機酸金属塩を 4 0 重量%となるようにエタノールに溶解したときの溶解性を示す。

【 0 0 8 8 】

【表 2】

	Mg原料	Mg原料 仕込量 (g)	有機酸 原料	有機酸 原料 仕込量 (g)	有機酸 原料の 純度 (%)	COOH /Mg	溶媒 (水含有量) (重量%)	溶媒 仕込量 (g)	反応 温度 (°C)	脱溶剤 温度 (°C)	有機酸 金属塩 純度 (重量%)	有機酸金属塩 中のMg/Ca 含有量 (重量%)	エタノール 溶解性
実施例 1	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	酪酸A	77.7	99.5	2.06	水 (100)	300	60	50	99.5	99.6/0.2	○
実施例 2	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	吉草酸	89.3	99.5	2.04	水 (100)	300	60	50	99.5	99.6/0.2	○
実施例 3	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カプロン酸 A	101.6	99.1	2.03	水 (100)	300	55	-40	99.5	99.6/0.2	○
実施例 4	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カプロン酸 A	101.6	99.1	2.03	水 (100)	300	60	60	99.6	99.8/0.1	○
実施例 5	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カプロン酸 A	124.8	99.1	2.49	水 (100)	300	55	60	99.5	99.6/0.2	○
実施例 6	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カプリル酸	127.1	99.2	2.05	水/エタノール (75)	350	55	-40	99.5	99.6/0.2	○
実施例 7	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カプリン酸	151.8	99.4	2.05	水/エタノール (25)	400	60	60	99.5	99.6/0.2	○

【 0 0 8 9 】

【表 3】

	Mg原料	Mg原料 仕込量 (g)	有機酸 原料	有機酸 原料 仕込量 (g)	有機酸 原料の 純度 (%)	COOH /Mg	溶媒 (水含有量) (重量%)	溶媒 仕込量 (g)	反応 温度 (°C)	脱溶剤 温度 (°C)	有機酸 金属塩 純度 (重量%)	有機酸金属塩 中のMg/Ca 含有量 (重量%)	エタノール 溶解性
比較例 1	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	ラリル酸	173.5	99.9	2.03	水/エタノール (33)	600	60	60	99.4	99.6/0.2	×
比較例 2	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カ7ロン酸 B	105.0	96.0	2.03	水 (100)	300	55	50	93.4	99.6/0.2	×
比較例 3	Mg(OH) ₂	25 0.42mol	カ7ロン酸 A	99.5	99.1	2.03	水 (100)	300	55	50	97.0	97.4/2.1	×
比較例 4	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	酪酸B	79.6	96.0	2.03	水 (100)	300	60	60	92.3	99.6/0.2	×
比較例 5	Mg(OH) ₂	25 0.42mol	カ7リル酸	124.0	99.2	2.03	水 (100)	300	60	60	97.3	97.8/1.9	×
比較例 6	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カ7ロン酸 B	98.0	96.0	1.90	水 (100)	300	60	60	89.3	99.6/0.2	×
比較例 7	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カ7ロン酸 B	206.5	96.0	4.00	水 (100)	300	60	60	90.2	99.6/0.2	×
比較例 8	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	ラリル酸	180.0	99.9	2.10	水/エタノール (5)	500	70	50	98.2	99.6/0.2	×
比較例 9	Mg(OH) ₂	25 0.42mol	カ7ロン酸 A	99.5	99.1	2.03	水 (100)	300	60	100	95.6	97.4/2.3	×
比較例 10	Mg(OH) ₂	25 0.43mol	カ7ロン酸 B	105.0	96.0	2.03	水 (100)	300	100	100	90.1	99.6/0.2	×

【 0 0 9 0 】

(塗布液 1 ～ 2 2 の調製および酸化マグネシウム膜の調製)

各実施例 1 ～ 7 および比較例 1 ～ 1 0 で作成した有機酸金属塩を、表 4 に示す組成の混合有機溶媒に室温で溶解し、塗布液を作成した。この塗布液を $0.5\ \mu\text{m}$ P T F E 製メンブランフィルターでろ過後、スピンコーターを用いてガラス基板上に有機酸マグネシウム塩の薄膜を作成した。ただし、塗布液 2 では、メンブランフィルターでろ過を行っていない。このガラス基板を焼成炉に入れ、空気雰囲気下、 $5\ ^\circ\text{C}/\text{min.}$ で $450\ ^\circ\text{C}$ まで加熱して金属酸化膜を得た。

【 0 0 9 1 】

本実施例で得られた有機酸金属塩を用いて作成された塗布液およびその塗布液を用いて焼成された酸化マグネシウム薄膜について、前記記載の方法に基づいて評価を行った。表 4 に、有機酸金属塩の種類、溶媒の組成、有機酸マグネシウム塩の含有量、有機酸金属塩溶解時の白濁の程度、塗布液の経時安定性、焼成後の酸化マグネシウム薄膜の膜厚および表面状態を示す。

【 0 0 9 2 】

【表 4】

塗布液	使用した 有機酸Mg塩	溶媒 (重量比)	有機酸 Mg塩の 濃度 (重量%)	有機溶媒 への 溶解性	塗布液の 経時 安定性	MgO膜の 膜厚 (μm)	MgO膜の 白濁・ ひび割れ の有無
塗布液1	実施例1	イタノール/PGMEA=1/0.5	30	○	○	0.6	なし
塗布液2	実施例2	イタノール/EGMEA=1/1	30	○	○	0.4	なし
塗布液3	実施例3	イタノール/PGMEA=1/0.8	40	○	○	0.5	なし
塗布液4	実施例3	1-ブタノール/EGMEA=1/0.8	30	○	○	0.4	なし
塗布液5	実施例3	1-ヘキサノール/PGME=1/0.5	30	○	○	0.4	なし
塗布液6	実施例3	1-オクタノール/PGEE=1/0.5	30	○	○	0.4	なし
塗布液7	実施例3	エチレングリコール/PGMEA=1/0.5	30	○	○	0.4	なし
塗布液8	実施例3	オクタノール/PGMEA=0.2/0.8/0.8	30	○	○	0.4	なし
塗布液9	実施例4	1-ブタノール/PGMAC=1/1	30	○	○	0.4	なし
塗布液10	実施例5	イタノール/EGBE=1/0.5	40	○	○	0.5	なし
塗布液11	実施例6	1-オクタノール/EGME=1/0.7	30	○	○	0.5	なし
塗布液12	実施例7	イタノール/EGBE=1/0.5	30	○	○	0.4	なし
塗布液13	比較例1	イタノール/PGMEA=1/0.5	10	×	—	—	—
塗布液14	比較例2	イタノール/EGMEA=1/1	20	×	△	0.2	なし
塗布液15	比較例3	イタノール/PGME=1/0.6	40	△	×	0.3	あり
塗布液16	比較例4	1-ブタノール/EGME=1/0.5	30	×	△	0.3	なし
塗布液17	比較例5	イタノール/PGEE=1/0.8	20	△	×	0.2	あり
塗布液18	比較例6	イタノール/PGMEA=1/0.8	20	×	△	0.1	なし
塗布液19	比較例7	イタノール/ PGMEA =1/0.8	20	○	○	0.08	なし
塗布液20	比較例8	イタノール/ PGMEA =1/0.8	20	×	—	—	—
塗布液21	比較例9	イタノール/ PGMEA =1/0.8	20	×	△	0.1	なし
塗布液22	比較例10	イタノール/ PGMEA =1/0.8	20	×	△	0.1	なし

PGMEA:プロピレングリコールモノメチルエーテルアセテート
 PGME:プロピレングリコールモノメチルエーテル
 PGEE:プロピレングリコールモノメチルエーテル
 EGMEA:エチレングリコールモノメチルエーテルアセテート
 EGME:エチレングリコールモノメチルエーテル
 EGBE:エチレングリコールモノメチルエーテル

【0093】

表2および表4から明らかなように、実施例1～7の有機酸金属塩は、いずれ

も、炭素数 4～10 の飽和モノカルボン酸が 97 重量%以上である飽和モノカルボン酸と無機マグネシウム化合物とから得られる有機酸金属塩であり、かつ有機酸マグネシウム塩が 99 重量%以上含有されている。このような有機酸金属塩は、塗布液として用いられる溶媒への溶解性に優れ、かつ得られた塗布液の経時安定性も高い。表 4 に示すように、実施例 1～7 の有機酸金属塩を含有する塗布液を用いて焼成を行うことにより、白濁やひび割れのない透明な酸化マグネシウム膜を作成することができた。塗布液 2 では、メンブランフィルターでろ過を行っていないにもかかわらず、優れた塗膜が形成された。

【0094】

また、表 2 および表 4 から明らかなように、実施例 1～7 の有機酸金属塩は、いずれも、無機マグネシウム化合物として水酸化マグネシウムを用い、その 1 モルに対して、やや過剰量の炭素数 4～10 の飽和モノカルボン酸（2～2.5 モルの間）を反応させて、合成されたものである。いずれの実施例も、水を 10 重量%以上含有する有機溶媒中で合成反応が行われ、80℃以下の温度で溶媒除去を行う工程を含んでいた。

【0095】

一方、表 3 および表 4 から明かなように、比較例 1 および 8 の有機酸金属塩は、使用した a 成分が、炭素数 12 の飽和モノカルボン酸である。比較例 2、4 および 10 の有機酸金属塩は、使用した a 成分の飽和モノカルボン酸の純度が 97 重量%未満である。比較例 3、5 および 9 は、a 成分である飽和モノカルボン酸の純度が 97 重量%以上のものを使用したか、得られた有機酸金属塩の有機酸マグネシウム塩の含有量が 99 重量%未満であった。このような有機酸マグネシウム塩の含有量が 99 重量%未満の有機酸金属塩は、溶媒への溶解性が低く、得られる塗布液の経時安定性も悪い。比較例 3 および 5 の有機酸金属塩を含有する塗布液を用いて焼成される酸化マグネシウム薄膜は白濁およびひび割れが観察された。また、比較例 1 および 8 の有機酸金属塩は、アルコール溶媒への溶解性が著しく悪く、塗布溶液を調製することができなかった。

【0096】

また、比較例 6 は、無機マグネシウム化合物 1 モルに対して、2 モル未満の飽

和モノカルボン酸を反応させていた。比較例 7 は、無機マグネシウム化合物 1 モルに対して、3. 0 モルを超える飽和モノカルボン酸を反応させていた。

【0 0 9 7】

比較例 6 および 1 0 の製造方法で得られた有機酸金属塩は、溶媒への溶解性が著しく悪く、また、得られる溶液の経時安定性も低い。これらの有機酸金属塩を溶解させた塗布液中には、不溶成分が多く残存していた。ガラス基板上に塗布する前にメンブランフィルターで濾過して、基板に塗布した。焼成後に得られた酸化マグネシウム薄膜は、非常に膜厚の薄いものであり、実用に耐えうるものではなかった。比較例 7 の製造方法で得られる有機酸金属塩は、溶媒への溶解性、得られる塗布液の経時安定性に問題はないが、合成段階で過剰のカルボン酸成分を用いているので、結果として金属含有量が非常に低い状態になっていた。したがって、比較例 7 の有機酸金属塩を用いて塗布液を調製し、それを用いて焼成後に得られる酸化マグネシウム薄膜は、膜厚の薄いものとなり、実用に耐えうるものではなかった。これは、純度が 9 7 % 未満のカプロン酸（カプロン酸 B）を用いたことに加えて、カプロン酸を過剰に（4 モル）用いたことにより、反応しなかったカプロン酸が、そのまま塗布液中に持ちこまれたためと考えられる。

【0 0 9 8】

【発明の効果】

本発明の、実質的に有機酸マグネシウム塩からなる有機酸金属塩は、芳香族炭化水素あるいはアミン化合物を含有しない溶媒以外の溶媒（例えば、アルコール系溶媒およびエステル系溶媒）への溶解性に優れているため、酸化マグネシウム薄膜形成における焼成工程で、焼成残渣として膜中に残存することなく、NO_xを発生させることもない。また、本発明の有機酸金属塩は、酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液としたときに経時安定性に優れ、透明性の高い塗布成膜用塗布液を提供することができる。さらに、この塗布液を用いて成膜、焼成を行うことにより、透明性が高く、ひび割れのない、均一な酸化マグネシウム薄膜を得ることができる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 乾燥・焼成時に蒸発・分解しやすくかつ環境に悪影響を及ぼさない溶媒に容易に溶解し、経時安定性に優れた塗布液が調製でき、焼成後に透明性に優れた酸化マグネシウム薄膜を形成し得る、有機酸マグネシウム塩を提供すること。

【解決手段】 炭素数4～10の飽和モノカルボン酸またはその塩を97重量%以上含有する飽和モノカルボン酸またはその塩と、無機マグネシウム化合物とを反応させて、該有機酸金属塩中に有機酸マグネシウム塩が99重量%以上含有されている有機酸金属塩を得る。この有機酸金属塩は、実質的に有機酸マグネシウム塩からなり、アルコール系溶媒またはアルコール系溶媒を5重量%以上含有する混合溶媒への溶解性に優れ、酸化マグネシウム薄膜形成用塗布液としたときに経時安定性に優れている。また、この塗布液から得られる塗布膜は均一性に優れ、焼成により、透明性の高い、実用性の高い膜厚を有する酸化マグネシウム膜が得られる。塗布後の焼成に際し、膜内に溶媒残渣が残留せず、NO_xなどの環境汚染ガスを排出することもない。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 2 - 3 1 2 6 6 2

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 4 3 4 1]

1 . 変更年月日

1 9 9 4 年 1 1 月 9 日

[変更理由]

住所変更

住 所

東京都渋谷区恵比寿四丁目 2 0 番 3 号

氏 名

日本油脂株式会社